

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-143677

(43)Date of publication of application : 21.05.2002

(51)Int.Cl. B01J 20/18
B01D 53/04
B01J 20/34

(21)Application number : 2001-280327 (71)Applicant : BOC GROUP INC:THE
(22)Date of filing : 14.09.2001 (72)Inventor : BULOW MARTIN
DONMIN SHEN

(30)Priority
Priority number : 2000 661815 Priority date : 14.09.2000 Priority country : US

(54) IMPROVED ADSORBENT COMPOSITION

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a new adsorbent formulation containing an active component, which is formed into adsorbent particles together with a binder which contributes toward improving the proper adsorbing characteristics of the final adsorbent particles.

SOLUTION: An adsorbent composition containing about 20-95 wt.% at least one active adsorbent component and about 80-5 wt.% at least one diluent component is provided. The at least one diluent component is partially or entirely converted into an active diluent component by additional chemical treatment and/or heat treatment.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2002-143677

(P2002-143677A)

(43)公開日 平成14年5月21日(2002.5.21)

| (51)Int.Cl. ⁷ | 識別記号 | F I | テーマコード(参考) |
|-------------------------------|------|---------------|-------------|
| B 0 1 J 20/18 | | B 0 1 J 20/18 | A 4 D 0 1 2 |
| | | | B 4 G 0 6 6 |
| B 0 1 D 53/04 | | B 0 1 D 53/04 | B |
| | | | F |
| B 0 1 J 20/34 | | B 0 1 J 20/34 | H |
| 審査請求 未請求 請求項の数12 O L (全 13 頁) | | | |

(21)出願番号 特願2001-280327(P2001-280327)

(22)出願日 平成13年9月14日(2001.9.14)

(31)優先権主張番号 09/661815

(32)優先日 平成12年9月14日(2000.9.14)

(33)優先権主張国 米国(US)

(71)出願人 591051184

ザ・ビーオーシー・グループ・インコーポ
レーテッド

THE BOC GROUP INCOR
PORATED

アメリカ合衆国ニュージャージー州07974,
ニュー・プロヴィデンス, マーレイ・ヒ
ル, マウンテン・アベニュー 575

(74)代理人 100089705

弁理士 社本 一夫 (外5名)

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 改良された吸着剤組成物

(57)【要約】

【解決課題】 最終的な吸着剤粒子の固有吸着特性の改良に寄与するバインダと一緒に能動成分を粒子に形成することによる能動成分から成る新規な吸着剤配合物を提供する。

【解決手段】 吸着剤組成物であって、少なくとも1種の能動吸着剤成分約20重量%~95重量%と、少なくとも1種の希釈剤成分約80重量%~5重量%と、を含む吸着剤組成物が提供される。少なくとも1種の希釈剤成分は、追加の化学処理及び/又は熱処理によって、部分的に又は全体的に能動希釈剤成分に変換される。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 吸着剤組成物であって、少なくとも 1 種の能動吸着剤成分約 20 重量%～95 重量%と、少なくとも 1 種の希釈剤成分約 80 重量%～5 重量%と、を含む吸着剤組成物。

【請求項 2】 請求項 1 に記載の吸着剤組成物であって、能動吸着剤成分は、ゼオライト構造タイプ BEA、CH A、EMT、ERI、FAU、FER、HEU、LTA、LTI、MAZ、MEI、MFI、MOR、MTW、OFF、ZSM-2、ZSM-18、ZSM-20 及びこれらの混合物からなる群より選択されることを特徴とする吸着剤組成物。

【請求項 3】 請求項 1 に記載の吸着剤組成物であって、少なくとも 1 種の希釈剤成分は、クレイ、シリカ、アルミナ、金属酸化物及びこれらの混合物からなる群より選択されることを特徴とする吸着剤組成物。

【請求項 4】 請求項 1 に記載の吸着剤組成物であって、少なくとも 1 種の希釈剤成分は、追加の化学処理及び/又は熱処理によって、部分的に又は全体的に能動希釈剤成分に変換されることを特徴とする吸着剤組成物。

【請求項 5】 請求項 1 に記載の吸着剤組成物であって、ビーズ、押出物、中空押出物、モノリシック又はラミネートの形態であることを特徴とする吸着剤組成物。

【請求項 6】 ガス混合物からガス成分を分離する方法であって、(a) ガス混合物を、所定温度、所定圧力にて、少なくとも 1 種の能動吸着剤成分約 20 重量%～95 重量%及び少なくとも 1 種の希釈剤成分約 80 重量%～5 重量%を含む吸着剤組成物を含有する少なくとも 1 の吸着域に通過させ、こうして、ガス混合物からガス成分を優先的に吸着させる工程と、(b) 上記所定温度よりも高温にて、上記所定圧力よりも低圧にて、又は上記所定温度よりも高温で且つ上記所定圧力よりも低圧にて、上記吸着組成物を再生する工程と、を含む吸着プロセスにガス混合物を供することを含む方法。

【請求項 7】 請求項 6 に記載の方法であって、能動希釈剤成分は、シリカ、アタパルジャイト、ベントナイト、カオリン、セピオライト（海泡石）物質及びこれらの混合物からなる群より選択される物質を基本とする方法。

【請求項 8】 請求項 6 に記載の方法であって、ゼオライト構造タイプ FAU は 80～98% の範囲の交換値 (exchange value) を有するカルシウム交換ゼオライトであることを特徴とする方法。

【請求項 9】 請求項 6 に記載の方法であって、ガス成分は窒素であり、ガス混合物は空気である方法。

【請求項 10】 請求項 6 に記載の方法であって、ガス成分はアルケンであり、ガス混合物はアルケン-アルカン混合物である方法。

【請求項 11】 請求項 6 に記載の方法であって、ガス成分はアルカンであり、ガス混合物は、アルカン、二酸化炭素及び水から成る方法。

【請求項 12】 請求項 6 に記載の方法であって、ガス成分は一酸化二窒素であり、ガス混合物は空気である方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、ガス混合物の精製及び分離用の圧力スィング吸着及び温度スィング吸着などのサイクル吸着方法に関する新規な吸着剤設計を提供する。特に、本発明は、最終吸着剤粒子の改良された固有吸着特性に寄与するバインダと共に粒子に形状付与された能動成分から製造された吸着剤を提供する。

【0002】

【発明の背景】 吸着は、純粋ガスの製造、物理的及び/又は化学的取り扱いの前のガス及びこれらの混合物の精製、及び流体廃棄流の処理のための単位操作として、十分に確立されている。大気の前処理及び分離は、吸着方法が広範囲に用いられている主要な分野の一つを構成する。これらの効率を増加させるために、新規な吸着剤配合及びそれらの利用方法が恒久的に求められている。

【0003】 商業的及び技術的に興味強い分野の一つとして代表的なものは、空気の前処理の前の空気の予備精製である。空気の前処理による窒素 N₂ および酸素 O₂ の精製ばかりでなくアルゴン Ar の精製に対する慣用の空気分離ユニット (ASUs) は、基本的に 2 個もしくは少なくとも 3 個の非常に低温で運転する一体化蒸留塔からなる。これらの低温ゆえに、基本的に、水蒸気 H₂O 及び二酸化炭素 CO₂ は、ASU への圧縮空気供給流から取り除かれる。もし取り除かれなければ、ASU の低温区域は凍結して、製造を一時停止させて、閉塞区域を暖めて、再度気化させて、凍結ガスの邪魔な固体塊 (マス) を取り除くことが必要になる。これは、非常にコストがかかる。ASU の凍結を防止するために、圧縮空気供給流中の H₂O 及び CO₂ 含有量をそれぞれ 0.1 ppm 及び 1.0 ppm 未満にしなければならないことが、一般に認められている。その上、別の汚染物質、例えば低分子量炭化水素類及び一酸化二窒素 N₂O もまた低温蒸留塔への空気供給物中に存在するかもしれず、危険なプロセス体制を防止するために、これらも言及した分離工程の前に取り除かれなければならない。

【0004】 空気の予備精製方法及び装置は、上述のレベルの汚染物質と絶えず接触するだけの容量を有していなければならないが、望ましくは関連する要求レベルを越える容量を有し、効果的な態様で行われなければならない。これは、予備精製のコストが直接的に ASU のガス製造コストに付加されるので、特に重要である。

【0005】 現在、空気の予備精製の商業的な方法は、熱交換器の逆転 (reversing heat exchangers)、温度スィング吸着、圧力スィング吸着及び触媒予備精製技術を含む。

【0006】 熱交換器の逆転は、通路内で、凍結と蒸発

とを交互に繰り返すことによって、水蒸気及び二酸化炭素を取り除く。かようなシステムは、多量の、典型的には50%以上の洗浄用製造ガス、すなわち通路の再生用のガスを必要とする。したがって、生成物収率は、供給物の約50%に制限される。この重大な欠点を特徴的機械的問題及びノイズ問題と組み合わせた結果として、ASUsの前に空気予備精製的手段として熱交換器の逆転を用いることは、近年、着実に減少している。

【0007】 空気の温度スィング吸着 (TSA) 予備精製において、不純物は、比較的低い大気温度で、典型的には約5~15℃で、空気から取り除かれ、吸着剤の再生は昇温した温度、例えば約150~250℃の領域で行われる。再生に必要な製造ガスの量は、典型的には製造ガスの約10~25%だけである。よって、TSAプロセスは、リバース熱交換器を利用する場合はるかに凌駕する考慮すべき改良を呈する。しかし、TSAプロセスは、供給ガスを急冷するための湿式冷却又は冷蔵ユニットと、再生ガスを加熱するための加熱ユニットと、を必要とする。したがって、上述の熱交換器の逆転よりも費用効果的であるけれども、資本及びエネルギー消費の両面で欠点を有する。

【0008】 圧力スィング吸着 (PSA) (又は圧力真空スィング吸着 (PVSA)) プロセスは、例えば、空気予備精製手段として、TSAプロセスに対する興味深い代替手段である。なぜなら、吸着及び脱着による再生のいずれも原則として大気温度にて行われるからである。一般に、PSAプロセスは、TSAプロセスにおけるよりも実質的に多くの再生ガスを必要とする。これは、低温分離生成物の高い回収が必要とされる場合には欠点となる。PSA空気予備精製ユニットが低温ASUプラントに接続される場合には、大気圧に近い圧力で操作される低温区域からの廃棄物流は、吸着床を再生するためのページとして用いられる。供給空気は、圧力下で、活性アルミナの粒子の層を通過して、H₂O及びCO₂のバルクを取り除き、次いで、FAU構造タイプ、例えばNaXゼオライトなどのゼオライト粒子の層を通過して、残留低濃度のH₂O及びCO₂を取り除く。この態様における吸着層の配置は、PSA床の温度効果、すなわち脱着中の温度降下を増加させることを注記する。他の構成において、活性アルミナだけが供給空気からH₂O及びCO₂の両者を取り除くために用いられる。この配置は、温度効果を減少させるために必要である。

【0009】 PSAに基づく多くの予備精製方法が文献において提案されているが、関連する資本コストが高いので、実際に商業的に用いられているものは少ない。一般に、公知のPSA予備精製プロセスは、ページガスとしての供給物を最低でも25%、典型的には40~50%を必要とする。低い吸着率の生成物を有することの結果として、かようなプロセスは資本コストが高くなる。空気予備精製システムの資本コストを減少させることは、大きなブ

ラントを意図する場合に、特に重要である。したがって、大きなプラントに対して、予備精製システム運転における改良によって、結果的に相当のコスト節約をすることができることは容易に理解されよう。

【0010】 ガスの精製及び分離の産業的プロセスにおいて有用なより効果的な吸着物質、コストがかからない方法及び設備を開発する努力が、絶えず行われている。本発明は、最終的な吸着剤粒子の固有吸着特性の改良に寄与するバインダと一緒に能動成分を粒子に形成することによる能動成分から成る新規な吸着剤配合物を提供する。

【0011】

【発明の概要】 本発明は、改良された吸着剤、並びにこの吸着剤のガス混合物の精製及び分離のためのプロセスにおける圧力スィング吸着及び温度スィング吸着への使用に関する。改良された吸着剤は、バインダ含有量及び最終的な吸着剤粒子の改良された固有吸着特性が生じるような態様でのバインダの挙動を最適化する特定の配合を含む。本明細書において「固有吸着特性」とは、問題の吸着分子又は精製プロセスに関して、最終的な吸着剤粒子の吸着性能を直接的に意味する吸着剤の吸着特性、すなわち容量及び選択性を特徴付け／言及するために用いる。これらの配合物は、少なくとも1種の能動吸着成分と、少なくとも1種のバインダ成分とを含む。能動吸着成分は、公知の吸着物質、例えば微結晶ゼオライトを含むものでもよい。押出物又はビーズなどの最終的な吸着剤粒子、すなわちミリメートルサイズ範囲の粒子にバインダ特性及び形状特性を与えるバインダ成分は、最終的な吸着剤粒子に改良された吸着挙動が生じるようなタイプ及び量で扱われる。

【0012】 最終的な吸着剤粒子に関して、結合手順の結果として、その中の少なくとも1種の能動吸着成分、例えば固有吸着特性を有する微結晶ゼオライト物質が、仕上げ手順に起因するダメージが能動成分に対して生じない限り、少なくとも1種のバインダ成分が少なくとも1種の能動吸着成分に添加される程度まで量的に正確に希釈されて、最終的な材料の固有吸着パラメータとなることが知られている。結合物質は、最終的な吸着剤粒子に対して、機械的強度、安定性及び適切な二次多孔性系のみ起因すると考えられる。したがって、最終的な物質の固有吸着特性、すなわち吸着容量及び選択性への寄与に関する限り、バインダ成分は不活性又は受動的に挙動すると考えられる。よって、少なくとも1種のバインダは、「受動希釈剤」として考えることもできる。「希釈剤」の用語を用いることによって、出願人は、結合し形状を付与するバインダとして、つまり機械的強度並びに大規模の吸着設備における最終的な吸着剤粒子の使用を可能にするマクロポア移動特性を発揮するバインダとして、バインダ成分を規定する。同様に、「受動希釈剤」は、最終吸着剤粒子の固有吸着特性に加わらない。

これに反して、本発明の目的のために、さらに「能動希釈剤」が規定されている。この用語は、「受動希釈剤」の言及された特徴に加えて、最終的な吸着剤粒子の全体的な吸着特性、特に、圧力スィング吸着プロセス又は温度スィング吸着プロセスがガス混合物の精製及び分離として実行されるガス圧力、吸着層濃度（吸着量）及び温度などの物理的パラメータの範囲における容量及び選択性などその固有吸着パラメータに寄与するバイндаを規定する。

【0013】

【好ましい実施形態の説明】本発明の改良された吸着剤は、最終的な吸着剤粒子の改良された吸着特性が生じるような態様でバイндаの含有量及び挙動を最適化する特定の配合物を含む。これらの配合物は、少なくとも1種の能動吸着剤成分と、少なくとも1種のバイнда成分とを含む。能動吸着成分は、微結晶ゼオライト等の公知の吸着材料から選択してもよい。最終的な吸着剤に、押出物又はビーズなど、すなわちミリメートルサイズ範囲の粒子として結合特性及び形状特性を付与するバイнда成分は、タイプ及び量並びに最終的な吸着剤粒子の改良された固有吸着特性が結果的に生じるような吸着挙動の観点から、扱われる。

【0014】最終的な吸着剤粒子に関して、結合手順の結果として、全体の取り扱いプロセスの仕上げ工程中に副作用として能動吸着剤成分にダメージが生じない限り、最終的な吸着剤粒子中の少なくとも1種の能動吸着成分、例えば特定の固有吸着特性を有する微結晶ゼオライト物質が、少なくとも1種のバイнда成分が少なくとも1種の能動吸着剤成分に添加される程度まで量的に正確に希釈されることが知られている。最終的な材料の固有吸着特性は、ある量的な程度まで変化するであろう。結合物質は、最終的な吸着剤粒子に対して、機械的強度、安定性及び適切な二次多孔性系にのみ寄与すると考えられる。したがって、最終的な物質粒子の吸着容量及び選択性に対する寄与に関する限り、バイнда成分は不活性又は受動的に挙動する。よって、少なくとも1種のバイндаは「受動希釈剤」として考えることができる。

「希釈剤」の用語を用いることによって、出願人は、結合し形状を付与し、機械的強度並びにマクロポア移動特性を付与するバイндаとして希釈剤を規定する。同様に、「受動希釈剤」は、最終的な吸着剤粒子の固有吸着特性に寄与しない。これに反して、「活性希釈剤」はもまた規定することができる。この用語は、「受動希釈剤」の言及した特性に加えて、最終的な吸着剤粒子の全体的な吸着特性、特に、ガス混合物の精製及び分離のために実施される圧力スィング吸着プロセス又は温度スィング吸着プロセスのガス圧力、吸着層濃度（吸着量）及び温度などの物理的パラメータの範囲内における容量及び選択性などのその固有吸着特性に寄与するバイндаを規定する。

【0015】本発明は、少なくとも1種の能動吸着剤成分と少なくとも1種の「能動希釈剤」成分とを含む新規な吸着剤組成物を提供する。少なくとも1種の能動吸着剤成分は、最終的な吸着剤粒子などの全体の組成物に対して約20重量%～約95重量%であり、一方少なくとも1種の「能動希釈剤」成分はこの吸着組成物の約80重量%～約5重量%である。

【0016】吸着材料の少なくとも1種の能動成分は、ゼオライト構造タイプBEA、CHA、EMT、ERI、FAU、FER、HEU、LTA、LTL、MAZ、MEI、MEL、MFI、MOR、MTW、OFF、ZSM-2、ZSM-18、ZSM-20及びこれらの混合物からなる群より選択される。本明細書において用いられるこれらの略称は、国際ゼオライト協会（International Zeolite Association : IZA）による種々のゼオライト構造タイプに対する規定（IZAのStructure Commissionの委任によりElsevier（ロンドン）から出版された"Atlas of Zeolite Structure Types" W.M. Meier, D.H. Olson及びCh. Baerlocher、第4版、1996参照）に対応する。

【0017】これらのゼオライトは、微結晶性であり、ある範囲を超える微結晶のサイズ分布を有する粒状などである。「合成されたまま」の形態であるゼオライト微結晶は、原則として、約0.2～15ミクロンの範囲の一次寸法を有し、本発明の好ましい実施形態においては、約0.5～5ミクロンの範囲の一次粒子寸法を有する。本発明の目的にとって、「一次粒子寸法」は、「合成されたまま」の粒状製造物の平均粒子サイズを取り巻く球形の直径として規定される。

【0018】さらに好ましい実施形態において、少なくとも1種のゼオライトは、構造タイプEMT、FAU、LTA、MEL、MFI及びZSM-20又はこれらの混合物である。最も好ましくは、少なくとも1種のゼオライトは、FAU又はMEL及びMFI構造タイプのいずれかである。この実施形態において、FAU構造タイプと称されるゼオライトの一次微結晶粒子は、Xタイプのゼオライトと称される高アルミニウム含有物又はアルミニウム欠乏すなわちYタイプのゼオライトと称される高シリコン含有物のいずれかである。一般に、Xタイプゼオライトは、シリコン対アルミニウムの原子比が1.2～約1.5の範囲にある慣用のXタイプゼオライト、シリコン対アルミニウムの原子比が1.1～約1.2未満の範囲にあるXゼオライトとして規定される中シリコンタイプXゼオライト（MSX）又はシリコン対アルミニウムの原子比が0.9～約1.1未満の範囲にある低シリコンタイプXゼオライト（LSX）として規定することができる。ゼオライトX中のシリコン対アルミニウムの原子比の理論的最小値は1.0であるけれども、ゼオライトの構造中の欠陥、閉塞したアルミナ及び／又はアルミナートなどの不純物の存在及び／又は測定誤差ゆえに、0.9程度の低いシリコン対アルミニウムの原子比を有するタイプXゼオライトが測定される。本記載によつて、タイプXゼオライトのシリコン対アルミニウムの最

小原子比は0.9である。本発明の好ましい実施形態において、凝集塊は、約0.9～約1.2未満のシリコン対アルミニウム原子比を有するゼオライトX、すなわちMSX及びLSXの組合せを含み、より好ましい実施形態においては実質的にLSXのみを含み、実質的にゼオライトカルシウムLSX (CaLSX) からなるものでもよい。

【0019】一方、アルミニウム欠陥FAU構造タイプゼオライト、すなわちタイプYゼオライトも周知である。出願人は、これらを超安定Yタイプゼオライト (Ultra stable Y type zeolite) 及び脱アルミナートYタイプゼオライト (dealuminated Y type zeolite) と称する。本発明の別の実施形態において、タイプYゼオライトは、好ましくは、シリコン対アルミニウムの原子比が約5～約300の範囲にある。より好ましくは、シリコン対アルミニウムの原子比が約10～約250の範囲にある。最も好ましくは、シリコン対アルミニウムの原子比が約20～約200の範囲にある。

【0020】本発明のMFI構造タイプゼオライト及びMEL構造タイプゼオライトは、好ましくは、それぞれ、シリカライト-1及びシリカライト-2としても知られているアルミニウム欠陥MFIゼオライト及びアルミニウム欠陥MELゼオライトであり、関連する吸着剤はこれらの混合物である。低シリコンMFI及びMFI構造タイプゼオライトもまたそれぞれZSM-11及びZSM-5として知られている。好ましくは、タイプMFIゼオライト及びタイプMELゼオライトは、シリコン対アルミニウムの原子比が約15～1000以上の範囲にある。より好ましくは、シリコン対アルミニウムの原子比が約150～約1000の範囲にある。最も好ましくは、シリコン対アルミニウムの原子比が約500～約1000の範囲にある。シリコン対アルミニウム比に対する上限、すなわち値1000は、この濃度範囲にある化学分析を考慮する限り、不確定な境界ゆえに設定したものである。このパラメータ値を超える物質の自明な形態及び変形もまたすべて包含すると解釈すべきである。

【0021】本明細書において用いているように、「不活性希釈剤」及び「能動希釈剤」の両者は、アモルファス、部分的に結晶性又は結晶性バインダ物質であってもよい。「不活性希釈剤」とは、「合成したまま」の粒状（微結晶）ゼオライト性物質の凝集塊及びこれらの適当な変形物に用いるに適切なクレイ、シリカ、アルミナ及びこれらの混合物の種々のタイプからなるバインダ物質を意味し、このバインダ物質は凝集の結果としてガス吸着容量が無視できるほど少ないか又は有していない。同様に「能動希釈剤」とは、「合成したまま」の粒状（微結晶）ゼオライト性物質の凝集塊及びこれらの変形物に用いるに適切なクレイ、シリカ、アルミナ及び小レアの組合せの種々のタイプからなるバインダ物質を意味するが、このバインダ物質は、凝集及び／又は続く化学処理又は物理処理の結果として、能動吸着剤組成物すなわちゼオライト成分自身と同じ物質に変換することなく、

相当量のガス吸着容量を有するものである。

【0022】バインダ物質が「不活性希釈剤」である結合し形状が付与された吸着剤粒子を製造することは当業者には周知のことであり、一般的に工業的に実施されていることである。クレイタイプ材料を用いるかようなゼオライトーバインダ複合物の製造の工業的プロセスは、特に、Krieger Publishing Company (Malabar, Florida) から1984年に発行されたD. W. Breckの"Zeolite Molecular Sieves" 第9章（初版は1974年にWiley (New York) により発行された）に包括的に記載されている。そこには、本願に関連知識の例として引用されている米国特許第3,773,690にも記載されているが、上述の手順に加えて、バインダ物質を最終吸着剤粒子に含まれる能動吸着剤成分と同じ物質に変換することが記載されている。しかし、かような場合は、本発明とは完全に異なる。なぜなら、前者の手順は、能動吸着剤成分が少なくとも95重量%含まれるバインダ欠陥又は完全にバインダを含まない最終吸着剤粒子の組成物を導くからである。さらに、後者の種類の最終的な吸着剤物質のタイプの大半は、比較的高価なばかりでなく、所定の圧力エンベロープ (pressure envelopes) を越える不十分な仕事容量を導くかもしれないプロセス温度における吸着等温線の比較的急勾配な傾斜ゆえに、かような吸着剤物質はPSAプロセス及びPVSAプロセスにおいて用いるにはあまり適していないからである。他方、通常よりも大きな程度まで吸着剤の能動成分を「希釈」することによって被るかもしれない吸着等温線の緩やかな傾斜は、これらの粒子の飽和容量は減少しているが、しばしば、PSAプロセスの所定圧力エンベロープ内で最終的な吸着剤粒子の仕事容量の増加をもたらすことがある。本発明における「能動希釈剤」のコンセプトは、いわゆる「バインダレス」吸着剤と、固有吸着特性を考慮する限りにおいては不活性であるバインダを多量に含む吸着剤との間に存在するギャップを埋める。この「能動希釈剤」コンセプトは、所定の吸着圧力に関する高性能を伴う低コスト材料の利点を併せ持つ。

【0023】本発明に関する限り、吸着剤は、二次粒子の形状付与又は仕上げ又は複合物製造プロセスの適当な工程における追加の化学処理又は物理処理のいずれかのプロセスが、「能動希釈剤」の特性を有するバインダ成分の形成を導く場合に、予想することができる。「受動希釈剤」が生じる場合との違いは、化学組成、つまり能動成分の範囲になければならないバインダ物質自身の化学特性及び微小粒子サイズに基づく。これは、本質的に又は微結晶ゼオライト物質のこれらの特性に対する類似性ゆえに、能動吸着剤成分の微小粒子と「能動希釈剤」の微小粒子との間の界面領域上に、最終的な吸着剤粒子製品における能動吸着剤成分のパターンと同様であるべき微小孔のある種のパターンを強制的に付すかもしれない。適切なバインダ物質の選択は、能動吸着剤成分の性

質に依存する。この成分と「希釈剤」との間の対応性が高いことが予想される。選択された特定の結合条件が、かような「能動希釈剤」特性を有するバインダを含む最終的な吸着剤製品の生成を助長し得る。例えば、クレイタイプバインダは、アタパルジャイト、ベントナイト、カオリン及びセピオライト鉱物群から選択され得る。適切なシリカ源は、水ガラス、シリカゾル、エアロゾル（フュームドシリカ）、シリカゲル及び沈降シリカを含む。最終仕上げタイプの吸着剤組成物を調製するに有用なアルミナ源は、水酸化アルミニウム水和物、疑似ペー
10 マイト（pseudo-boehmite）、アルミナ三水和物など；原料カオリン、か焼カオリン、メタカオリンなどの適切なカオリン；カンダイト（kandites）などを含む。最終的な「能動希釈剤」相の望ましいカチオン組成物は、バインダ組成物の適切な選択によって処理され得る。上記に挙げられたバインダの二成分系組成物並びにシリカアルミナタイプの二成分系組成物及び他の金属酸化物タイプの二成分系組成物もまた、本発明において用いられるように選択されて、「能動希釈剤」特性を有する物質を形成し得る。

【0024】吸着剤組成物は、用いられるゼオライトのタイプに応じて、いかなる慣用の方法によっても調製することができる。ガス吸着用途に用いられる最終的な吸着剤における少なくとも1種の能動吸着剤成分と少なくとも1種の希釈剤成分との相対比率は、広い範囲にわたって変えてもよい。所望の能動吸着剤成分／希釈剤成分比率は、とりわけ最終的な吸着剤粒子が利用されるであろう特定の用途に依存するであろう。重量基準で95%程度の能動吸着剤成分を含む比率を用いることが望ましいかもしれない。他方、特に経済的な理由により、主として「能動希釈剤」成分からなる最終的な吸着剤粒子を用いることが好ましいかもしれない。一般に、最終的な吸着剤粒子は、最終的な吸着剤粒子中の全成分の総量に基づいて、少なくとも1種の吸着剤成分20～95%と、少なくとも1種の「能動希釈剤」成分80～5%とを含み得る。好ましい実施形態において、最終的な吸着剤粒子は、少なくとも1種の吸着剤成分約30～80重量%と、少なくとも1種の「能動希釈剤」成分約70～10重量%と、を含む。最も好ましい実施形態において、最終的な吸着剤粒子は、少なくとも1種の能動吸着剤成分約40～85重量%と、少なくとも1種の「能動希釈剤」成分約60～15重量%と、を含む。

【0025】本発明の吸着剤成分は、二次粒子としても知られている形状付与された粒子の形態又はモノリシック及びラミネート配置の形態のいずれかで用いられる。従来の方法は、吸着剤モノリシック及びラミネートを製造することが知られている。上記二次粒子は、一連の方法によって、例えば塔又は大規模吸着プロセスの床等の設備内で使用することができるよう種々の幾何学形態に形状付与される。特に、少なくとも1種の能動吸着剤

成分と少なくとも1種の「能動希釈剤」との混合物は、適当な公知の方法、例えば押出し及びペレット形成又はビーズ形成等の方法によって凝集する。これらのプロセス中に、適切に選択されたセルロース誘導体などの有機物質を添加して、最終的な吸着剤粒子の物質移動特性を助長することに対する信頼性があるマクロポアの適切な形成を確立してもよい。凝集プロセスは、所望の粒子サイズの「生の」凝集体を製造する条件下で実施される。一般に、凝集粒子の平均寸法は、約0.2～15mmの範囲が望ましく、約0.5～5mmの範囲が好ましく、約1～3mmの範囲が最も好ましい。「生の」凝集体は、適切に選択されたガス大気圧において、ある種のマクロポア構造パターンを創製し水を除去する所望の硬化、有機物の燃尽に十分な時間だけ、約400～900℃の範囲の温度まで加熱されることによって、最終的な吸着剤粒子に変換される。この温度は、好ましくは450～700℃の範囲であり、最も好ましくは500～600℃の範囲である。

【0026】本発明の吸着プロセスにおいて、ガス混合物の他の成分よりも非常に強く吸着されるガス混合物の成分は、強く吸着された成分の吸着を効果的にする条件下で、ガス混合物を吸着剤組成物に接触させることによって、他の成分から分離される。このプロセスは、温度スィング吸着または圧力スィング吸着であってもよく、後者は圧力真空スィング吸着を含む。好ましくは、このプロセスは、圧力スィング吸着である。

【0027】本発明の方法の吸着工程は、気相温度スィング吸着プロセス及び圧力スィング吸着プロセスに用いられる周知の通常の圧力で実施されてもよい。温度スィング吸着に対して、吸着工程は、50bara程度の高い絶対圧力で実施され得るが、好ましくは約20bara以下の絶対圧力で、最も好ましくは約10bara以下の絶対圧力で実施される。

【0028】吸着プロセスがPSAである場合、プロセスの圧力エンベロープは、広範囲に変えてもよい。この圧力エンベロープは、吸着が起こる圧力～吸着物質からのガスの脱着が達成される圧力の範囲にある。この脱着工程は、再生としても知られている。圧力エンベロープは、技術的な問題ゆえに、吸着特性の面からだけでなく経済的パラメータからも考慮されるべきガス混合物の特定の吸着特性により引き起こされるであろう多くの環境に依存する。典型的には、PSAプロセスがPVSAプロセスである場合には、脱着は大気圧よりも低い圧力で行われ、圧力エンベロープは、通常は、吸着工程について約5bara～再生工程について約0.05baraの範囲の絶対圧力であり、好ましくは約3bara～約0.15baraの範囲の絶対圧力であり、最も好ましくは吸着工程について約0.5bara～再生工程について約0.2baraの範囲の絶対圧力である。例えば炭化水素含有ガス混合物についてなど大気圧よりも低い圧力がPSAプロセスに利用されない場合、脱着又は再生圧力は、通常は1bara又はこの圧力付近～1.5

bara以下であることが好ましいが、所定の吸着剤物質についてみられるようなガス成分の特定の吸着特性ゆえに吸着圧力は広範囲に変えることができる。通常は、脱着圧力は、約5baraであるが、好ましくは約3baraであり、最も好ましくは約2.5baraである。

【0029】PSAプロセス及びPVSAプロセスに対して、吸着工程を実施する温度は、分離される特定のガス、精製又は分離されるガス混合物中での特定のガスの相対含量、用いられる特定の吸着剤、吸着が実施される圧力など多数の因子に依存する。

【0030】一般に、PSAプロセスの吸着工程は、少なくとも-50℃の温度で実施され、好ましくは少なくとも約0℃の温度で実施され、最も好ましくは少なくとも約15℃の温度で実施される。吸着工程が実施される上限温度は、一般に約200℃であり、吸着工程は好ましくは約100℃以下の温度で実施され、最も好ましくは約75℃以下の温度で実施される。

【0031】TSAプロセスにおいて、吸着工程は、一般に、約5℃～約50℃の範囲の温度で実施され、吸着剤再生工程は、一般に、約100℃～約250℃の範囲の温度で実施される。

【0032】理論的には、精製又は分離されるべきガス混合物の組成は、広範囲に変わり得る。精製を考慮すれば、本発明のように、ガス流からの1種又は多種の痕跡不純物の除去は1桁%～ppm濃度範囲で行われて、ppb領域にあるほど低い濃度まで値が下がることが理解される。ガス混合物成分の分離を考慮すれば、供給物中での濃度は数十%程度に高く、精製ガス中の濃度は1桁%値～ppmレベル値程度に低い。

【0033】上述したように、本発明の方法は、一方のガスが本発明の吸着剤により非常に強く吸着され、他方のガスが吸着平衡又は吸着非平衡のいずれかの条件下、すなわちプロセスの吸着動的状態にある限り、いかなる2種類のガスをも分離するために用いることができる。本方法は、特に、酸素からの窒素の分離、酸素からの窒素及びアルゴンの分離、空気からの二酸化炭素の分離、空気からの一酸化二窒素の分離、炭化水素類の分離、例えばエタン、プロパンなどのアルカン類からのエチレン、プロピレンなどのアルケン類の分離、枝分かれ炭化水素類からの直鎖炭化水素類の分離、例えばインブタンからのn-ブタンの分離、二酸化炭素からのガス状低分子量炭化水素類の分離等に適する。窒素、酸素及びアルゴン温分離は低温でも良好に実施され得るが、これらのガスの分離は、好ましくは、大気温度以上で実施される。二酸化炭素からのエタン、プロパン及びn-ブタンなどのガス状低分子量炭化水素類の分離、特に、ガス流が水分を含む場合には興味深いものである。かような分離のために、充分に高いシリコン対アルミニウム原子比を有するMFI及びMEL並びにFAU構造タイプなどの疎水性カチオン欠陥ゼオライト物質が適切な吸着物質である。

【0034】効果的な態様で完全自動化連続運転を可能とするように、システム内のガス流をモニターして自動的に調節するための慣用の設備を利用することも本発明の範囲に含まれることを理解されたい。

【0035】以下、本発明を、予期されなかったバインダの「能動希釈剤」特性を示す特定の実施例に関して説明する。一般に、以下の実施例は、特定の吸着剤の調製及び該吸着剤のガス精製方法での利用を教示する。以下の実施例及び実施形態は、本発明の範囲を制限するものではない。

【0036】

【実施例】実施例1：受動希釈剤特性及び能動希釈剤特性を有する高アルミナFAUタイプゼオライト吸着剤の調製

1.03のシリコン対アルミニウム原子比を有する低シリコンX (LSX) ゼオライトをUK1,580,928に記載されている手順に従って合成した。交換可能なカチオンとしてナトリウムイオン及びカリウムイオンを有する合成物を次いで、80℃で、ゼオライト1gあたり1.0N NaCl 溶液20mLでの4回の静的交換 (static exchange) によってナトリウムLSXに変換した。各交換後、サンプルを水性NaOH (0.01N) で洗浄した。次いで、以下の手順に従ってナトリウムカチオンを対カルシウムカチオン交換した。フィルターケーキ (含水量約35%) 15gを蒸留水200mL中に懸濁させた。15分攪拌した後、CaCl₂・H₂O 29gを添加した。次いで、得られた混合物を攪拌しながら60℃まで加熱し、この温度にて6時間攪拌した。得られた熱い懸濁物を素早くろ過して、フィルターケーキを蒸留水各100mLで3回洗浄した。洗浄したフィルターケーキを再び、蒸留水200mL中に懸濁させた。15分攪拌した後、さらにCaCl₂・H₂O 29gを添加した。次いで、得られた混合物を攪拌しながら60℃まで加熱して、この温度にて6時間攪拌した。得られた熱い懸濁物を素早くろ過し、2回交換フィルターケーキを蒸留水各100mLで3回洗浄し、60℃にてわずかに乾燥させた。

【0037】乾燥した物質の分析は、少なくとも95%のナトリウムに対するカルシウムのイオン交換を示した。次いで、得られたカルシウムLSX粉末をビーズ形状に顆粒化した。ビーズは、c. 88wt.% CaLSX及びバインダ又は「不活性希釈剤」として12wt.% SiO₂を含んでいた。次いで、得られた物質の一部を乾燥し、580℃で、不活性ガス流中で、公知の活性化及び焼手順によって仕上げた (サンプル1)。

【0038】ビーズ化した物質の別の部分を、水よりも多いカルシウムヒドロキソアルミナート (calcium hydroxo-aluminate) 2Al(OH)₃・3Ca(OH)₂で、65℃で3時間連続攪拌しながら処理した。カルシウムヒドロキソアルミナートの量は、当初ビーズからなっていたバインダの総量がおそらく「能動希釈剤」の特性を与えるように選択した。得られた生成物をろ過し、乾燥して、第1の部

分と同様の条件下で活性化した（サンプル 2）。

実施例 2：受動希釈剤特性及び能動希釈剤特性を有する高シリカ FAU タイプゼオライトの調製

シリコン対アルミニウム原子比 100 を有する粒状（微結晶）高シリカ FAU タイプゼオライト（Degussa-Huls, Germany 製 Wessalith-DAY として販売）を用いて、米国特許第 5,316,993 の実施例 3 に概略が記載されている関連する理論に従って押出物を調製した。Tolsa (Spain) から入手できる低アルミニウム含有セピオライト（Pansil 200）をバインダとして用いた。マクロポア性を強めるために、微結晶セルロース NT-020（FMC BioPolymer (USA) 製）を用いた。ゼオライト結晶及びバインダ粒子の量は、FAU タイプ物質 40wt.% 及びバインダ 60wt.% を含む押出物を調製するように選択した。初期ゼオライト-バインダ混合物に添加したセルロース種の量は、乾燥重量として 10wt.% であった。最終的な吸着剤粒子を 2 つの異なる方法で調製した。第 1 の方法は、米国特許第 5,316,993 の実施例 3 に記載されている関連する部分に可能な限り従ったが、実験室ペレットプレスを用いて混合物を押出物と同様のマクロ粒子に形状付与した（サンプル 1）。第 2 の方法は、ゼオライト-バインダ-セルロース混合物の水性懸濁液の調製及び 65℃ で 3 時間連続攪拌の保持からなる中間工程を含むものであった。固体生成物をろ過し、練り可能な状態になるまで空気乾燥させた。実験室ペレットプレスを用いて、塊（マス）を押出物と同様のマクロ粒子に形状付与した（サンプル 2）。サンプル 1 及び 2 を浅いベッドに並べて、120℃ で 2 時間乾燥させ、100℃/hr の速度で 850℃ まで加熱し、この温度を乾燥室素流下でさらに 1 時間保持した。

実施例 3：受動希釈剤特性及び能動希釈剤特性を有する高アルミナ FAU タイプゼオライト吸着剤上での一酸化二窒素の吸着

実施例 1 で記載したように調製した CaLSX ビーズサンプル 1 及び 2 上での一酸化二窒素 N_2O に対する吸着データ（M. Bulow らによる J. Chem. Soc., Faraday Trans. I, vol. 79 (1983) 2457-2466 により記載されているピエゾメータシステムにより、温度 25℃ で測定した）に基づいて、未処理のままのサンプル 1 に対してサンプル 2 の継続処理の結果、バインダが推定される「能動希釈剤」特性をどの程度有するかを評価した。温度 25℃ 及び各場合に 10 torr であるガス圧力での N_2O に対する吸着データを、サンプル 1 に対して 1.750 mmol/g 及びサンプル 2 に対して 1.877 mmol/g とそれぞれ評価した。

【0039】サンプル 2 の吸着挙動は、所定条件での N_2O に対する吸着容量の増加（約 8% から約 9%）を示し、これは、当初はビーズからなるバインダの量の約半分が「能動希釈剤」特性を有する物質への変態に対応する。

実施例 4：受動希釈剤特性及び能動希釈剤特性を有する高シリカ MFI タイプゼオライト吸着剤による n-ブタンの

吸着

25℃ で測定した MFI 構造タイプのシリカライト-1 上での n-ブタン $n-C_4$ に対する吸着データに基づいて、「受動希釈剤」及び「能動希釈剤」の両者として作用するバインダの異なる含有量を有する二次粒子に対して、吸着剤等温線をラングミュア等温式によりモデル化した（図 1 参照）。「能動希釈剤」の場合に対して、仮想バインダ上での $n-C_4$ に対する吸着等温線を計算して、 $n-C_4$ 吸着飽和容量及びシリカライト-1 についての吸着定数 (adsorption constant amount) 15% 及び $n-C_4$ /シリカライト-1 系についての吸着定数 1/100 をそれぞれ推定した。純ゼオライト（黒四角）及び純バインダ（十字）上での $n-C_4$ に対する吸着等温線も図 1 に示す。適切な圧力-真空スイング吸着プロセス、すなわち温度 25℃ で 960 → 50 torr での特徴である圧力エンベロープにわたる $n-C_4$ /シリカライト-1 系の「受動希釈剤」の場合及び「能動希釈剤」の場合に対する従属 (Dependences) $\Delta n_s = f(c_{binder})$ を図 2 に示す。2 つの場合に対する予想された挙動が見られた。

実施例 5：受動希釈剤特性及び能動希釈剤特性を有する高シリカ FAU タイプゼオライト吸着剤による n-ブタンの吸着

我々の実験室で、M. Bulow らによる J. Chem. Soc., Faraday Trans. I, vol. 79 (1983) 2457-2466 により記載されているピエゾメータシステムにより、45℃ で測定したシリカ対アルミニウム比率約 100 を有する高シリカ FAU タイプの押出物上での n-ブタン $n-C_4$ に対する吸着データに基づいて、ラングミュア-フロイントリッヒ等温式により、押出物中のゼオライト結晶に対する吸着等温線及び「受動希釈剤」及び「能動希釈剤」の両方として作用すると推測されるバインダの異なる含有量を有する二次粒子に対する吸着等温線をモデル化した。「能動希釈剤」の場合を考慮すれば、用いたバインダ、すなわち市販のセピオライトタイプ鉱物バインダ（実施例 2 参照）に対する $n-C_4$ 吸着等温線を計算して、 $n-C_4$ 吸着飽和容量及び FAU タイプゼオライト結晶に対する吸着定数 (adsorption constant amount) 15% 及び $n-C_4$ /FAU タイプ結晶系に対する吸着定数 1/100 をそれぞれ推定した。FAU タイプ結晶（黒四角）上での $n-C_4$ に対する吸着等温線及び純バインダ（十字）上での $n-C_4$ に対する吸着等温線を「能動希釈剤」の場合を仮定する種々の組成物「能動組成分すなわちバインダ」に対する吸着等温線と一緒に図 3 に示す。

【0040】図 4 は、3 種の異なる圧力範囲における温度 45℃ での異なるバインダ含有量を有する種々の $n-C_4$ /押出物系の「能動希釈剤」の場合に対する従属 (Dependences) $\Delta n_s = f(c_{binder})$ を示す。

【0041】一般に、これらの結果から、本発明の最適化された組成物「能動成分すなわちバインダ」を最もよく使用するために、PSA プロセス体制パラメータに関するこれらの組成物の完全な考慮が必要になることが明か

10

20

30

40

50

となる。例えば、図4からわかるように、PVSAプロセスを示す3600→324torrなどの圧力エンベロープがあり、これに対して「能動希釈剤」コンセプトは働かない。他方、圧力スイング3600→900torrは実際のプロセスに用いることができるものに近から、n-C₄/FAUタイプゼオライト系に対する「能動希釈剤」の場合及び「受動希釈剤」の場合の間の比較を図5に示す。

【0042】n-C₄/FAUタイプゼオライト系に対して、「能動希釈剤」の場合の利点は、図、特に図5により証明される。結果として、MFI及びMEL並びにFAU構造タイプなどの高シリカゼオライトによる二酸化炭素及びn-ブタンからなる混合物の分離に対して、40～80wt.%程度に高い「能動希釈剤」バイнда含有量を有するビーズ及び／又は押出物などの粒子を用いることが有利である。

【0043】この結果は、同様に、プロパンなどの他の低分子炭化水素ガスを有する混合物に対しても適用し得ると考えることができる。

実施例6（仮定）：受動希釈剤特性及び能動希釈剤特性を有する高アルミナFAUタイプゼオライトによる一酸化二窒素及び痕跡不純物の吸着

この実施例において、空気からのN₂O及び低分子炭化

水素ガスの除去に関するテストは、実施例1サンプル2に従って、最終的な吸着剤粒子を製造するために用いたバイнда物質の「能動希釈剤」特性に基づいていると予測される。最終的な吸着剤粒子は、カルシウムカチオン交換値>95%を有するCaLSXゼオライト（当初：最終的な吸着剤粒子の88wt.%）及び最初は「不活性希釈剤」特性のみを有していたが実施例3に示すように所定条件下でN₂Oに対する吸着容量の予想増加（約8%から約9%）を示したバイндаとしてのSiO₂（当初：最終的な吸着剤粒子の12wt.%）とからなる8～12メッシュビーズにより示された。よって、バイндаの一部（「受動希釈剤」）は、「能動希釈剤」特性を備える物質に変態していた。テストは、空気の低温蒸留の前に空気の予備精製に用いられる典型的なベンチ規模TSAユニット上で行われるべきであることを支持する。示された濃度でのテスト空気供給流中にあると予想される一酸化二窒素及び炭化水素類は、下記Table1の左から第1欄及び第3欄に示されている。

【0044】

【表1】

20

Table 1

| (1) 供給不純物濃度 ppm | (2) CaLSX：除去% | (3) 供給不純物濃度 ppm | (4) CaLSX+能動希釈 剤：除去% |
|--------------------------------------------|------------------|----------------------------------------------|----------------------------|
| 水（飽和） | （無視）* | 水（飽和） | （無視）* |
| CO ₂ (400) | （無視）* | CO ₂ (400) | （無視）* |
| N ₂ O(0.30-0.35) | 100 | N ₂ O(0.32-0.38) | 100 |
| CH ₄ (2.2) | 0 | CH ₄ (2.4) | 0 |
| C ₂ H ₆ (0.40-0.48) | 100 | C ₂ H ₆ (0.43-0.52) | 100 |
| C ₃ H ₈ (1.4-1.6) | 100 | C ₃ H ₈ (1.51-1.73) | 100 |
| C ₄ H ₁₀ (1.4) | 10 | C ₄ H ₁₀ (1.51) | 10 |
| C ₅ H ₁₂ (0.55-0.75) | 100 | C ₅ H ₁₂ (0.59-0.86) | 100 |
| C ₆ H ₁₄ (1.5-1.6) | 25 | C ₆ H ₁₄ (1.62-1.73) | 25 |
| n-C ₇ H ₁₆ (1.6-1.8) | 100 | n-C ₇ H ₁₆ (1.73-1.94) | 100 |

*水及び二酸化炭素の除去は、吸着塔の上流に位置する他の吸着剤からなる層により生じることを意味する。

【0045】これらの炭化水素類は、一連の関連する空気品質検査の結果に基づいて選択されている。炭化水素類の濃度は、空気品質検査において観察された最大値に基づいて設定された（第1欄参照）。しかし、供給空気中の痕跡不純物濃度は2つの実験について異なっている。Table1の左から第3欄と左から第1欄とを比較すれば明らかのように、「能動希釈剤」の場合には、供給空気中痕跡不純物濃度は約8%増加している。上述の化合物のすべての検出加下限は、FTIA分析により確立されたものである。吸着温度、供給ガス圧力、見かけの速度、及び床高さは、それぞれ、25℃、85.6psia（5.9×10⁵Pa）、0.59ft/sec（0.17m/sec）、59インチ（149.8cm）と推測される。このTSA PPUテスト実験の予測結果は、Table1の第2欄及び第4欄に報告されている。

【0046】Table1は、「能動希釈剤」の場合の最終的な吸着剤粒子が、存在するN₂O及び一連の炭化水素類を含むガス流中の痕跡不純物の増加した濃度を除去する

ことが予測されることを示す。

【0047】本発明を特定の実施形態に関して説明してきたが、当業者には本発明の多くの別の形態や変形例が自明であることを理解されたい。本発明の精神の範囲を逸脱しない限り、かような自明な形態及び変形例は特許請求の範囲及び本発明に含まれると考えるべきである。

【図面の簡単な説明】

【図1】図1は、高シリカMFI構造タイプゼオライト（シリカライト-1）、バイнда及びZXOBYOとして示されている種々のゼオライト（Z）-バイнда（B）組成物上でのn-ブタンに対する25℃での実験モデル吸着等温線を示すグラフである。

【図2】図2は、示された圧力範囲内で、25℃で、異なるバイнда含有量での高シリカMFI構造タイプゼオライト（シリカライト-1）の「受動希釈剤」の場合及び「能動希釈剤」の場合に対する従属（Dependences） $\Delta n_s = f(C_{blinder})$ として、n-ブタンの仕事吸着層容量を示

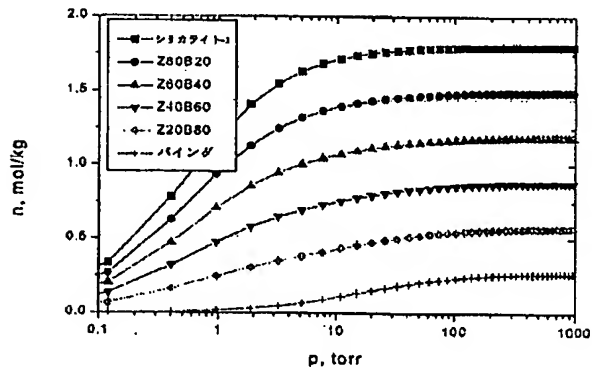
50

グラフである。

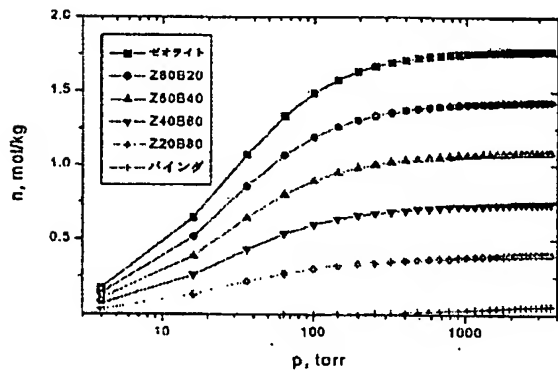
【図3】図3は、高シリカFAU構造タイプゼオライト、セピオライトバインダ及びZX0BY0として示されている種々のゼオライト（Z）-バインダ（B）組成物上でのn-ブタンに対する25℃での実験モデル吸着等温線を示すグラフである。

【図4】図4は、45℃で、異なるPSAプロセス圧力範囲での高シリカFAU構造タイプゼオライトの種々の「能動希釈剤」の場合に対する従属（Dependences） $\Delta n_s = f$

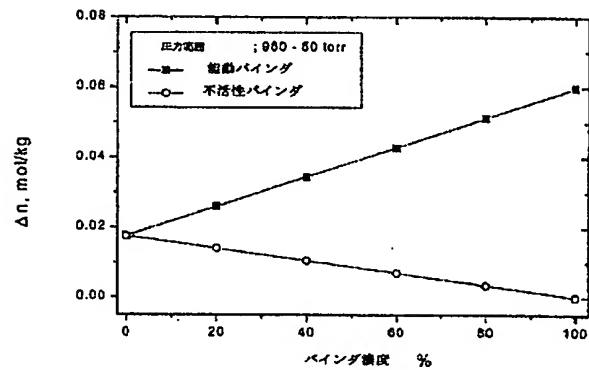
【図1】



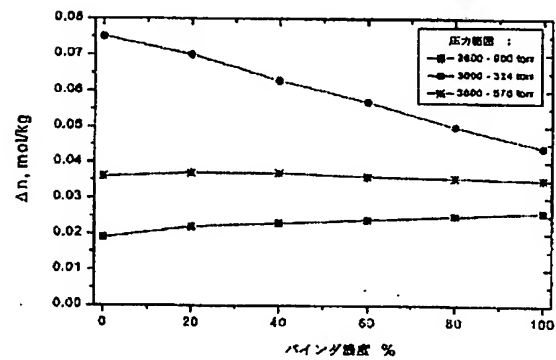
【図3】



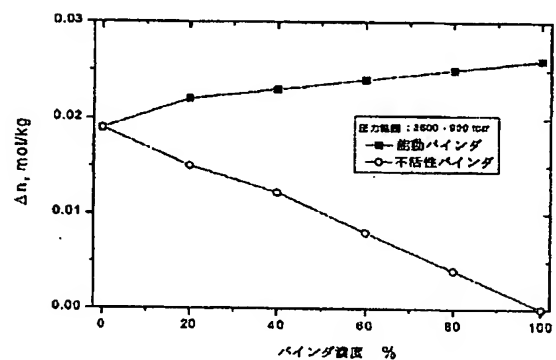
【図2】



【図4】



【図5】



【手続補正書】

【提出日】平成13年10月26日(2001. 10. 26)

【手続補正1】

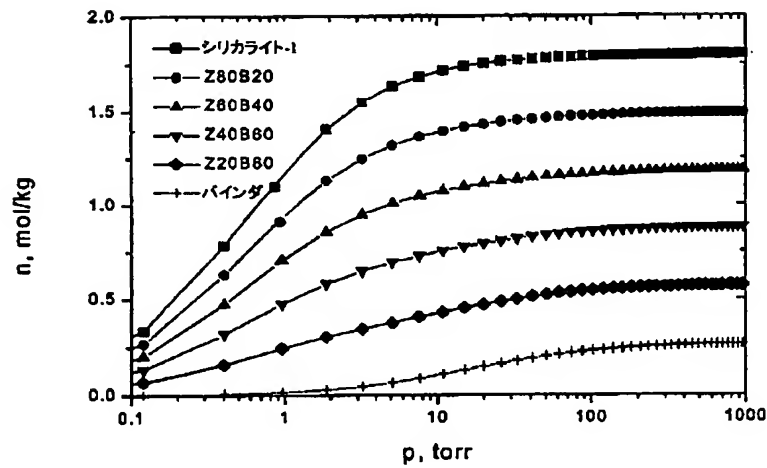
【補正対象書類名】図面

【補正対象項目名】全図

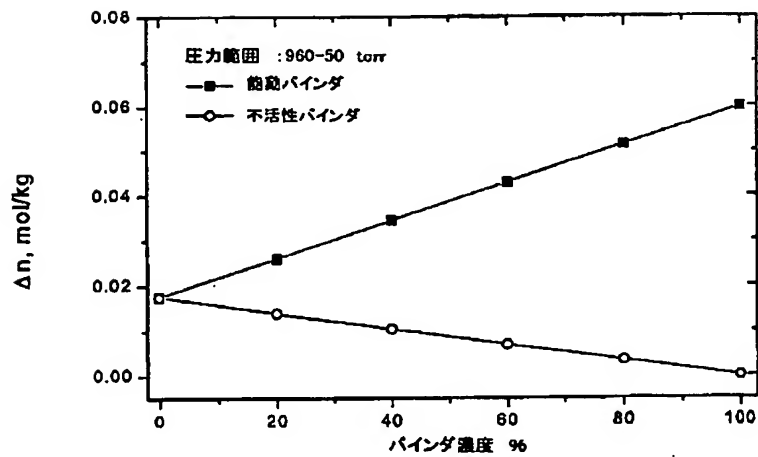
【補正方法】変更

【補正内容】

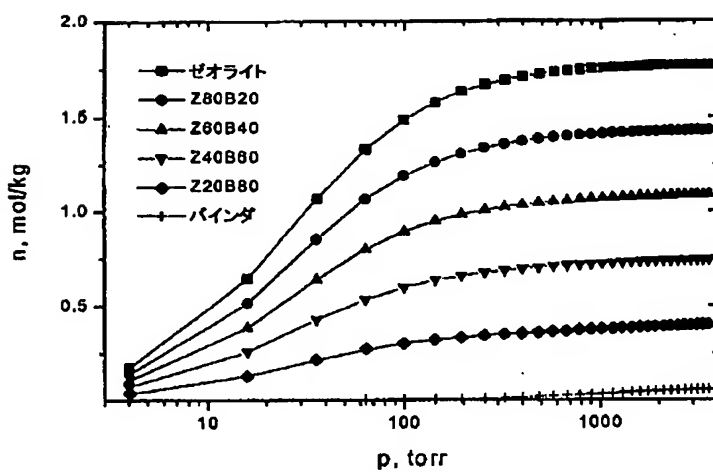
【図1】



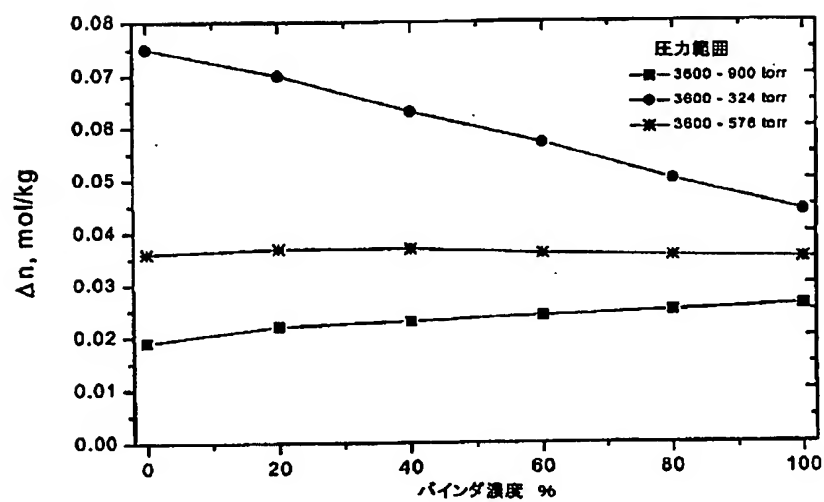
【図2】



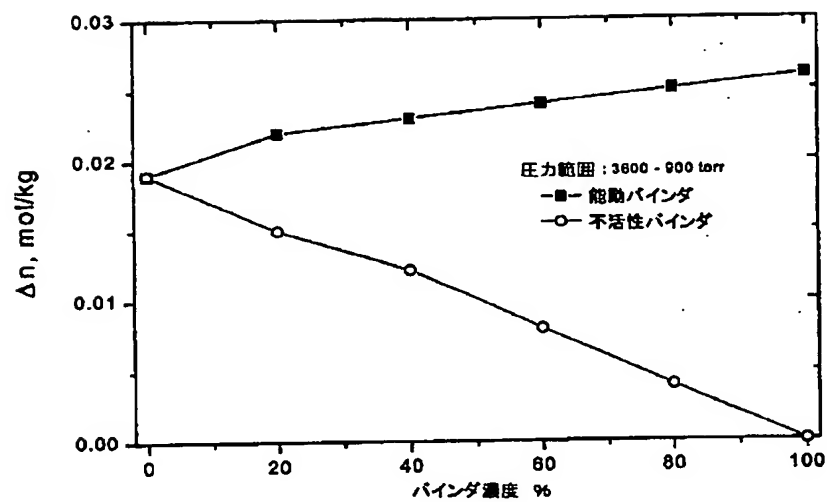
【図3】



【図4】



【図5】



.....
 フロントページの続き

(72)発明者 マルティン・ビュロウ
 アメリカ合衆国ニュージャージー州07920,
 バスキング・リッジ, ジェイムスタウン・
 ロード 54

(72)発明者 ドンミン・シェン
 アメリカ合衆国ニュージャージー州07922,
 パークレー・ハイツ, スナイダー・アベニ
 ュー 38

F ターム(参考) 4D012 CA05 CA15 CA20 CD01 CD05
 CD07 CG01 CG02 CK10
 4G066 AA12C AA12D AA20C AA20D
 AA22C AA22D AA61B AA62C
 AA62D AA63C AA63D AA64C
 AA64D BA05 BA09 CA27
 CA28 CA39 CA51 DA01 DA03
 DA07 GA01 GA14 GA16